

**Eötvös Loránd Tudomány Egyetem- Természettudományi Kar-
környezettan BSc**

**Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem-
Természettudományi Kar - Fizika tanszék**

Xenon eltávolításának számítógépes modellezése olvadt-sós reaktorokban



Balla Áron TDK dolgozata

Konzulensek:

Márkus Ferenc adjunktus, BME-TTK Fizika tanszék

Tóth Gergely docens, ELTE-TTK Fizikai-kémia tanszék

Tartalomjegyzék

- 1. Bevezető- A negyedik generációs reaktorok
3. oldal
- 2. Olvadt-sós reaktorok
6. oldal
- 3. Nemesgáz eltávolító rendszer
17. oldal
- 4. Xenon eltávolításának modellezése
21. oldal
- 5. Eredmények értékelése
26. oldal
- 6. Kitekintés
30. oldal
- 7. Köszönetnyilvánítás
30. oldal
- 8. Melléklet
32. oldal
- 9. Felhasznált irodalom- Hivatkozások
34. oldal

1. Bevezető – A negyedik generációs reaktorok

Vitathatatlan, hogy az emberiség jövőjének egyik kulcskérdése, a biztonságos energiaellátás. Világunk energiafogyasztása már jelenleg is hatalmas érték, azonban minden bizonnyal a jövőben ez még tovább fog fokozódni. Mindennapjaink legapróbb mozzanataiban is olyan gépeket, eszközöket használunk, melyek létrehozásához, működtetéséhez is energiára van szükség. Jelenleg felhasználásunk döntő hányadát nem megújuló, tehát előbb- utóbb kimerülő forrásokból fedezzük, éppen ezért bátran kijelenthetjük, hogy energia ellátásunk hosszútávon biztosan nem fenntartható. A jövő nem fosszilis energiahordozókra épülő ellátása, jelenleg még nem tisztázott, és aktív kutatás részét alkotja. Gyakran kéri vita tárgyát, hogy vajon a nukleáris iparnak mekkora szerepet kell vállalnia a jövő energiagazdaságában. Mind a csernobili, mind pedig a fukushimai reaktorbalesetek rávilágítottak, hogy a nukleáris energetika, jelenlegi formájában alkalmatlan hosszútávon az energiaellátásra. Ennek nagyon sok oka van. Napjaink nukleáris iparának biztonsága elsősorban a reaktorok szempontjából megkérdőjelezhető. A világban üzemelő reaktorok mindegyike csupán aktívan biztonságos, tehát ezek a reaktorok maguktól nem képesek üzemzavar esetén a bajt elhárítani, ehhez mindenesetben valamilyen külső berendezést kell megfelelően működtetni. További probléma a ma működő reaktorokkal, azok nyersanyaghasználata, hiszen jórészt az urán-235-ös izotópját használják energiatermelésre, mely a teljes uránmennyiség 0,72%-át teszi ki. Szintén gyakran felemlített hátránya a jelenlegi rendszernek a nagyaktivitású hulladék kérdésköre, valamint a nukleáris energia nem békés célú felhasználása.

Ezen problémák elhárítására hozták létre 2000-ben a Generation IV International Forum-ot (GIF). Ez egy nemzetközi keretprogram, mely célul tűzte ki maga elé, hogy olyan reaktorokat, és üzemanyagciklusokat fejleszt, melyek segítségével, az urán potenciálját megnövelik, a reaktorok biztonságát a lehető legmagasabbra emelik, minimalizálják a hulladék aktivitását, és tömegét, megakadályozzák a nukleáris energia katonai felhasználását. Összességében tehát a GIF célja, hogy elhárítsa az akadályt a nukleáris energia hosszú távú alkalmazhatósága elől. Ezen nemes cél elérése érdekében tehát egy teljesen új reaktor család kifejlesztését kezdték el a GIF keretprogramot követő országok, szervezetek, köztük az Euratom. Az új reaktorcsalád összesen 6 reaktorkonstrukciót foglal magába, melyeket negyedik generációs reaktoroknak neveztek el. Ezek sorban; Nátriumhűtésű gyorsreaktor

(Sodium cooled Fast Reactor, SFR), Ólomhűtésű gyorsreaktor (Lead cooled Fast Reactor, LFR), Gázhűtésű gyorsreaktor (Gas cooled Fast Reactor, GFR), Olvadt- sós reaktor (Molten Salt Reactor, MSR), Szuperkritikus-víz hűtésű reaktor (Supercritical Water cooled Reactor, SCWR), és a nagyon magas hőmérsékletű reaktor (Very High Temperature Reactor, VHTR). Mind a hat konstrukciót igyekeznek úgy megtervezni, hogy azokban megvalósuljon a passzív biztonság, tehát hogy a reaktorban olyan negatív visszacsatolások legyenek, melyek üzemzavar esetén, a reaktort nem engedik veszélyes állapotba jutni. A hat konstrukció közül, az első négy úgynevezett gyorsreaktor. Gyorsreaktorok legfontosabb tulajdonsága, hogy nagyenergiájú neutronokkal operálnak, melyek kettős béta negatív bomlással képesek az urán egyébként nem hasadó 238-as izotópját plutónium 239-es izotóppá alakítani, mely a gyorsneutronokkal való kölcsönhatás eredményeként hasad. Hasonlóképpen gyorsneutronok segítségével alakul át a tórium 232-es izotópjá hasadó urán-233-as izotóppá. Fontos látnunk, hogy mind az urán-238, mind a tórium-232, a jelenleg használt urán-235-nél nagyságrendekkel gyakoribb izotópok. Ráadásul gyorsneutronok ezeket az izotópokat nagyobb valószínűséggel hasítják, ennek köszönhetően a jelenlegi reaktorok 30-60 GWd/tHA (gigawattnap/ tonna hasadóanyag) kiégetése gyorsreaktorokban 200, maximálisan 500 GWd/tHA –ra növelhető. A nagy energiájú neutronoknak köszönhetően a reaktor teljesítménysűrűsége is megnövekszik, így kisebb méretű reaktorról érhető el ugyanakkora teljesítmény. Ezen okból a reaktorban uralkodó hőmérséklet is magasabb lesz, ami pedig a nukleáris erőmű egészének hatásfokát növeli. Mivel nagyenergiájú neutronok könnyen elhasítják a különböző urán, és transzurán izotópokat, az elhasznált üzemanyagban nem marad hasadó izotóp, melynek köszönhetően aktivitása kicsi, és nukleáris fegyverekhez sem használható fel. [COHEN 1981]

Láthatjuk tehát, hogy a negyedik generációs reaktorcsalád valóban ígéretes tulajdonságokkal rendelkezik, és tényleg elhozhatja a nukleáris energetika teljes körű átalakulását, mely az iparág jövője szempontjából elengedhetetlen. Fontos azonban azt is figyelembe vennünk, hogy ezen reaktorok többsége még távol áll a tényleges megvalósítástól, így ipari méretű üzemeltetésükhöz, a hozzájuk fűzött remények beváltásához, még igen sok kutatómunkára, fejlesztésre van szükség. A GIF keretprogramban résztvevő országok tervei, bár sokban eltérnek egymástól, általában abban megegyeznek, hogy, a negyedik generáció három leginkább előrehaladott konstrukciójának; a nátrium, az ólom, és a gázhűtésű gyorsreaktoroknak első demonstráló tesztreaktorai valamikor a 2020-as évek elején-közepén épülnének, a tényleges ipari méretű alkalmazásuk pedig a 2030-as évek közepétől várható leghamarabb. A család három további tagjának tényleges megvalósulása valószínűleg még

ennél is később lesz. Ezek között találhatjuk a negyedik generáció talán leginkább egzotikus tagját, a sok szempontból nagyon ígéretes olvadt-sós reaktorokat. [G. VAN GOETHEM ET AL.2009]

Az alábbiakban táblázatosan áttekinthetjük a negyedik generációs reaktorok alapvető tulajdonságait:

Koncepció	Neutron spektrum	Hőmérséklet °C	Hűtőközeg	Nyomás	Ciklus	Alkalmazás
SFR	Gyors	510-550	Nátrium	Alacsony	Zárt	Villamos energia
LFR	Gyors	550-830	Ólom/Pb-Bi	Alacsony	Zárt	Villamos energia/ hőforrás
GFR	Gyors	850	Hélium	Magas	Zárt	Villamos energia/ hőforrás
MSR	Epi-termikus/ Gyors	650-950	Fluorid só olvadék	Alacsony	Zárt	Villamos energia/ hőforrás
SCWR	Termikus	510-625	Szuperkritikus víz	Nagyon magas	Nyílt	Villamos energia
VHTR	Termikus	~1000	Folyékony fém/ Fluorid só olvadék/ Hélium	Alacsony/ Magas	Nyílt	Villamos energia/ hőforrás

1. táblázat: A negyedik generációs reaktorok alapvető tulajdonságainak összehasonlítása

2.Olvadt-sós reaktorok

A negyedik generációs reaktorok között az olvadt sós reaktor számít a legnagyobb különlegességnek, hiszen ez a reaktor tér el leginkább a ma használt hagyományos konstrukcióktól. Talán éppen ezeknek a nagy különbségeknek köszönhető e reaktorok nagy potenciálja a IV. generáció céljainak megvalósításához. A legszembevetőbb felépítésbeli különlegesség az, hogy olvadt sós reaktorokban az üzemanyag, és a hűtőközeg egy fázist alkot. A reaktor belső terét, egy olvadt, fluorid sókból álló keverék tölti ki, melyben a hűtőközeg szerepét valamilyen alkáli fém-, vagy alkáliföldfém-fluorid tölti be, az üzemanyagként szolgáló hasadóanyag pedig nehézfém tri- vagy tertra- fluorid formájában van jelen, oldott állapotban. Ez a nem mindennapi elrendezés, néhány érdekes, előnyös tulajdonsággal ruházza fel a reaktort. Ezek közül az egyik legfontosabb, hogy a reaktor teljes egészében zajlik a nukleáris reakció, így a hőtermelés viszonylag nagy térfogatban oszlik el, a reaktornak nincsenek forró üzemanyag kazettái, melyek túlhevülése biztonsági kockázatot jelentene. A folyadék fázisú üzemanyag előnye még, hogy a reaktorban az izotóp eloszlás, egyenletes, ami a reaktor stabilitását tovább növeli. [M. W. ROSENTHAL 1961]

Olvadt-sós reaktorok talán leginnovatívabb tulajdonsága, hogy az üzemanyag pótlása, illetve a hasadási termékek eltávolítása a reaktorból üzem közben, tehát a reaktor leállítása nélkül megvalósítható. Ennek köszönhetően a reaktorban nem kell tárolni a több évre elegendő üzemanyag mennyiséget, a reaktorban mindig annyi hasadóanyag kell, hogy legyen, hogy a reakciót fenntartsa. Hasonlóképpen a reaktorban keletkező hasadási termékek, köztük sok reaktorméreg, eltávolíthatók üzem közben. Ezzel járó másik innováció az, hogy ilyen módon nincs szükség üzemanyag kompozíciók és mátrixok fejlesztésére, és gyártására, ami nagy előnye e koncepciónak a IV. generáció többi tagjához képest, mivel ilyen üzemanyagok fejlesztése és későbbi gyártása rengeteg pénzbe kerül, ami növeli a pénzügyi kockázatot.

Hogyha közelebbről is megvizsgáljuk a reaktor sóit, újabb nagy előnyeit láthatjuk a koncepciónak. Fluorid sók nagyon magas forráspontú ($F_p > 1400\text{ °C}$), stabil vegyületek, MSR reaktorok bizonyítottan működhetnek 650 °C fokos hőmérsékleten, mely 950 °C fok körüli hőmérsékletig emelhető innovatív reaktort felépítő anyagokkal. Fontos előnyük például a nátriumhűtésű reaktorokkal szemben, hogy sem levegővel, sem vízzel nem lépnek reakcióba. A reaktorban felhasználni kívánt fluoridok neutronmoderáló képessége viszonylag alacsony, így az elképzelés kiválóan alkalmazható gyors neutronú reaktorként. Szintén fontos, hogy a

sók neutronelnyelő képessége is csekély, ezért maga a hordozó só üzem közben nem válik radioaktívvá. [M. W. ROSENTHAL]

Az itt felsorolt előnyök miatt az MSR koncepció különösen jól alkalmazható szaporítóreaktoroknál. Hagyományos szaporítóreaktorokban a tenyésztendő anyag egy a reaktort körülvevő, úgynevezett köpenyben helyezkedik el. A tenyésztés eredményeképpen újonnan létrejött hasadóanyagot le kell választani, a köpenyt le kell fejtetni. Ez a művelet általában meglehetősen bonyolult, és igen kockázatos is, ráadásul a lefejtés idejére le kell állítani a reaktort. Ezzel szemben, olvadt-sós reaktorokban a tenyésztés is a fluorid só olvadékban mehet végbe. Ebben az esetben a tenyésztendő anyag fluoridja formájában kerülne a reaktorba, ahol tovább transzmutálna hasadóanyaggá, végül valamely hasadási termék formájában hagyná el a reaktort véglegesen. Ezzel a tenyésztési ciklus lezárult, mindenféle tenyésztési köpeny lefejtés, és üzemanyag kazettagyártás nélkül, úgy, hogy közben nincs szükség a reaktor leállítására. [G. VAN GOETHEM ET AL. 2009]

Olvadt-sós reaktorok üzemi biztonsága szempontjából fontos tényező, hogy nagy, negatív üregtényezővel jellemezhetőek, melynek értéke -10 pcm/K és -5 pcm/K között van. Ez elsősorban annak köszönhető, hogy amennyiben a reaktorban buborékok keletkeznek, akkor a buborékokon belül a hasadóanyag koncentráció lecsökken, ezért az aktivitás is csökkenni fog, ami pedig kisebb teljesítményhez vezet. A biztonságot tovább növeli, hogy a sók forráspontja nagyon magas, 1400 °C feletti értékű, így a reaktor hűtőközege, a normál üzemi hőmérséklet felett több száz fokkal, még mindig folyadék halmazállapotú. A sóolvadék relatív illékonyasága is alacsony, gőznyomása még magas hőmérsékleten is meglehetősen kis értékű. A fluoridok sűrűsége, és hőkapacitása is viszonylag nagy, így a reaktort nem kell nyomás alatt tartani, ami biztonsági szempontból fontos, továbbá csökkenti a reaktor költségeit, mivel nincs szükség a vízhűtéses reaktorok árának jelentős részét kitevő nagynyomású tartályra.

Az MSR koncepcióhoz terveznek egy, a passzív biztonságot megvalósító biztonsági berendezést. Ennek lényege, hogy a reaktor aljának középső részére egy a reaktorfal anyagától eltérő, annál alacsonyabb olvadáspontú fémből készült záró szelepet helyeznek, melyhez alulról egy csőrendszer és rekeszek csatlakoznak. Amennyiben a reaktorban a hőmérséklet vészesen megemelkedik, a záró szelep anyaga megolvad, és a só keverék, a gravitáció hatására a csőrendszeren keresztül, kis tároló rekeszekbe kerül, melyek elrendezése olyan, hogy bennük a láncreakció semmilyen körülmények között ne maradjon fent.

Olvadt sós reaktorok eredete mélyebben gyökerezik, mint a negyedik generáció, vagy a GIF keretprogram. Eredetileg az olvadt sós reaktor elgondolása az Egyesült Államokban keletkezett, a 40-es évek végén. Akkoriban nagyhatalmak szempontjából kulcsfontosságú volt nagy hatótávolságú bombázógépek kifejlesztése. Ilyen célok elérésével kapcsolatban merült fel, mint lehetőség, olyan bombázók tervezése, melyek nukleáris meghajtásúak lennének, és ily módon igen hosszú ideig tudnának a levegőben maradni. Egy nukleáris meghajtású repülőgép működtetéséhez egy olyan reaktorra lett volna szükség, mely kis helyen is elfér, nagyon magas hőmérsékleten üzemel, és főleg könnyű. E kritériumoknak egy termikus hagyományos könnyűvízes reaktor egyáltalán nem felelne meg, ezért az Oak Ridge National Laboratory, (ORNL) nevű Egyesült Államok-béli intézményben kifejlesztették az első olvadt sós reaktort. A reaktor 1954-ben mintegy 1000 órán keresztül működött, $2.5 \text{ MW}_{\text{th}}$ névleges teljesítménnyel, és 860°C -os maximális hőmérséklettel, só összetétele pedig; $\text{NaF-ZrF}_4\text{-UF}_4$ 53-41-6 mol% volt. Bár az Aircraft Nuclear Propulsion (ANP) névre keresztelt programot 1961-ben leállították, a reaktor koncepció azonban az ORNL központi kutatási témájává vált. Tíz évvel később 1964-ben épült a Liquid-Fluoride-Thorium-Reactor, (LFTR) nevű tesztreaktor, a Molten Salt Reactor Experiment (MSRE) nevű program keretében, szintén az ORNL-ben. A reaktor $7.5 \text{ MW}_{\text{th}}$ teljesítményű, 650°C -os üzemi hőmérsékletű volt, $\text{LiF-BeF}_2\text{-ZrF}_4\text{-UF}_4$ 65-29-5-1 mol %-os sóösszetétellel. Összesen 1.5 év maximális üzemnek megfelelő mértékű teszt üzemeltetése 1965-1969-ig tartott. Mivel azonban a könnyűvízes, és nyomott vizes reaktorok a világban ez idő tájt már uralkodóakká váltak, az olvadt sós elképzelés feledésbe merült. Egészen 2000-ig, amikor a GIF keretprogram a negyedik generációs MSR reaktorok bázisának választották az olvadt sós technológiát. A jelenlegi kutatások alapjául a két eddig üzemeltetett reaktorról gyűjtött tapasztalat szolgál. Látnunk kell azonban hogy az eddig üzemeltetett reaktorok és a negyedik generációs MSR között meglehetősen nagy különbségek állnak fenn. Mind az MSRE mind pedig az ANP programok kereteiben épült eddigi reaktorok epitermikus, vagy termikus neutronspektrumú koncepciók voltak, míg a negyedik generációs Molten Salt Fast Reactor, (MSFR) gyors neutronspektrumú. Alapvető különbség így tehát a két elképzelés között, hogy az eddigi reaktorokba grafit rudakat helyeztek el, melyek az MSFR-ből teljes mértékben hiányozni fognak. A fejlesztések ma is több irányba mutatnak, azonban a hosszútávon fenntartható nukleáris energiatermelés elérése miatt a gyorsneutronú elképzelések dominálnak. A termikus, epitermikus változatok előnyei hogy a kisebb teljesítménysűrűségnek köszönhetően ilyen reaktorok kevésbé veszélyesek, viszont a lassúbb neutronok miatt alacsonyabb a kiegészítés, és a konverziós ráta is. Külön fejlesztési területnek tekinthető, a tórium-232 üzemanyaggal működő Thorium-Molten Salt

Reactor, (TMSR), és a hagyományos vízhűtéses reaktorokból származó transzurán elemeket hasznosító Molten salt actinide recycler and transmutter (MOSART) reaktor is. Utóbbival kapcsolatban fontos megjegyezni, hogy az egyébként nagyaktivitású hulladék fő tömegét képző transzurán elemek hasításából nyer energiát. Természetesen ebben az esetben a különböző transzurán elemek (amerícium, kúrium, kalifornium...) tri- illetve tetra-fluoridjai kerülnek az olvadékba. Ezek oldódása, oldhatósága a só olvadékban, illetve az így létrejövő rendszer fázis egyensúlyai még nem teljesen ismertek, jelenleg is kutatás folyik e téren, a koncepció fejlesztésében élen járó oroszországi Kurchatov Intézetben. [M. ROSENTHAL 2009]

A sóösszetétel megválasztásakor legfontosabb szempont az, hogy a só a lehető legkisebb technikai és biztonsági kockázatot jelentse, neutronokkal, kismértékben lépjen kapcsolatba, a kiégetés, és a konverziós ráta is lehetőleg magas legyen. Alapvetően az MSR sói fluoridok, azonban konkrét elképzeléstől függően más-más összetétellel. Az Euratom által javasolt összetétel, 77.5mol% lítium-fluorid és 22.5mol% nehéz fém-fluorid (itt- a nehézfém U-233 vagy Th-232). Ez a sóösszetétel a két komponens eutektikus elegye, mely egy 550 °C fokos olvadáspontot eredményez. A hidrogén fluorid, pontosabban a trícium-fluorid keletkezésének elkerülésére a lítium 99.999%-ban a hetes tömegszámú lítiumból áll. Ennek oka az, hogy bár mind a 6-os, és 7-es izotóp bomlásából is trícium keletkezik, de a 7-es izotóp neutronokat kisebb valószínűséggel nyel el, így a fenti reakció is ritkábban zajlik le. A reaktort egy szintén fluorid sóból álló tenyészköpeny veszi körül, LiF-ThF₄ (77.5-22.5 mol%) összetétellel. A fluorid sók referencia összetétele a tórium alapú MSR -hez LiF-ThF₄ 78:22 és 71:29 mol % közötti. Ezen sóösszetétel MSFR -ben való alkalmazásra tökéletesen megfelel, de a koncepció megvalósítása érdekében további kutatások zajlanak jelenleg is, a keverék fizikai tulajdonságai (olvadáspont, gőznyomás, sűrűség, hőkapacitás, hőtágulás, viszkozitás, hővezetés) tekintetében. Fontos fejlesztési terület a különböző transzurán elem -trifluoridok oldhatósága a referencia keverékben, mivel LWR reaktorok nagy aktivitású hulladéka ilyen formában lesz „elégetve” MOSART reaktorokban. Ahhoz, hogy e tulajdonságait a só keveréknek megfelelőre állítsák, a keverékhez különböző adalékok adagolhatók. Az egyik legfontosabb ilyen adalék a berillium-difluorid. Ennek adagolásával csökkenthető a rendszer elektrokémiai potenciálja, ami fontos biztonsági szempont, továbbá a neutron fluxust is emeli a berillium. Ennek oka az, hogy a berillium atommagja hajlamos neutron elnyelés után két neutron kibocsátani, tehát megduplázni a neutronok számát. Ez biztonsági szempontból nagyobb kockázatot jelent, a nagy neutron fluxus miatt, de gazdasági szempontból előnyös, mivel a több neutron több tenyésanyagot alakít át hasadóanyaggá. Berillium adagolásának

nagy hátránya hogy mérgező, ezért ezen anyag koncentrációját tanácsosabb alacsonyan tartani a reaktorban. Két alternatív adalék a NaF, és esetleg a CaF_2 , így a berillium helyett ma már a LiF-NaF-ThF₄ és a LiF-CaF₂-ThF₄ rendszerek vannak a kutatások középpontjában. MOSART reaktorokban szükséges mindemellett valamilyen nehézfém-fluorid adalék alkalmazása is. Ennek oka az, hogy általában a nagyobb rendszámú elemek kevésbé lépnek kölcsönhatásba a neutronokkal, aminek köszönhetően a reaktorban nagyobb lesz a neutronok energiája, melyre különösen nagy szükség van transzurán elemek hasításánál. Ilyen adalék lehet az ólom-difluorid (PbF_2), vagy a lantán-trifluorid (LaF_3) [G. VAN GOETHEM 2009]

Bár az olvadt-sós technológia referencia sóösszetétele a LiF-ThF₄ keverék, sok egyéb komponenssel kapcsolatban is folytak/folynak kutatások. Ilyen módon kerültek az MSR lehetséges sói közé a cirkónium-fluorid, (ZrF_4) a kálium-fluorid, (KF) és a rubídium-fluorid, (RbF) illetve ezeknek, és a referencia összetételnek bizonyos keverékei is. Ma már emiatt jó néhány lehetséges só összetétel áll rendelkezésre, különböző tulajdonságokkal, különböző előnyökkel. Természetesen a hosszú távú cél az lenne, hogy egy olyan sóösszetételt sikerüljön találni, melyben a lehető legtöbb előnyös tulajdonság, a lehető legnagyobb mértékben van jelen. Egy minden szempontból megfelelő MSR reaktor hordozósójának mindenképpen kis viszkozitásúnak, nagy sűrűségűnek kell lennie, nagy hőkapacitással. Emellett fontos hogy a só neutronmoderáló képessége, és neutron hatáskeresztmetszete is alacsony legyen. [D. T. INGERSOLL 2005]

Só összetétel (mol%)	Neutron hatáskeresztmetszet (grafitra vonatkoztatva) / térfogategység	Neutron moderációs ráta
2LiF–BeF₂	8	60
LiF–BeF₂–ZrF₄ (64.5–30.5–5)	8	54
NaF–BeF₂ (57–43)	28	15
LiF–NaF–BeF₂ (31–31–38)	20	22
LiF–ZrF₄ (51–49)	9	29
NaF–ZrF₄ (59.5–40.5)	24	10
LiF–NaF–ZrF₄ (26–37–37)	20	13
KF–ZrF₄ (58–42)	67	3
RbF–ZrF₄ (58–42)	14	13
LiF–KF (50–50)	97	2
LiF–RbF (44–56)	19	9
LiF–NaF–KF (46.5–11.5–42)	90	2
LiF–NaF–RbF (42–6–52)	20	8
Nehézzvíz	0.2	11449
Könnyűvíz	75	246
Grafit	1	863
Nátrium	47	2
UCO	285	2
UO₂	3583	0.1

2. táblázat: Különböző só összetételek, és néhány más anyag neutron elnyelése, és neutronmoderáló képessége [D. T. INGERSOLL 2005].

Nem elhanyagolható szempont még, hogy az üzem közbeni só kezelést hatékonyan lehessen elvégezni, valamint, hogy a só korróziós hatása a reaktor berendezésein a lehető legalacsonyabb legyen.

Reaktor-típus	Neutron spektrum	Alkalmazás	Hordozó só	Üzemanyagrendszer
MSFR (Breeder)	Termikus	Üzemanyag	LiF-BeF ₂ / LiF-ThF ₄	LiF-ThF ₄ -UF ₄ / LiF-ThF ₄ -PuF ₄
MSFR (Breeder)	--	Szekunder hűtőkör	NaF-NaBF ₄	--
MOSART (Burner)	Gyors	Üzemanyag	LiF-NaF/LiF-(NaF)-BeF ₂ / LiF-NaF-ThF ₄	LiF-(NaF)-BeF ₂ -AnF ₄ -AnF ₃
LS-VHTR	Termikus	Primer hűtőkör	LiF-BeF ₂	--
SFR	--	Szekunder hűtőkör	NaNO ₃ -KNO ₃ -(NaNO ₂)	--

3. táblázat: Olvadtsók különböző felhasználásai reaktorokban

A fluorid só rendszer egyetlen alternatívája a kloridok lennének. Klorid alapú MSR fejlesztésére már sok javaslat született. Ennek oka, hogy két fontos előnnyel járna ilyen sók használata. Az első, hogy a klór nagyobb rendszáma révén kevésbé lép kölcsönhatásba neutronokkal, ezzel növelve a gyors neutronok számát a magban, így a tenyésztés sebessége, és mértéke is nagyobb lenne. Kloridok használatával 1-nél jóval nagyobb konverziós rátát lehetne elérni. A második pedig az, hogy klorid alapú sók nagyobb mennyiségű hasadási terméket képesek a sóban tartani, így ezeket nem kell olyan gyorsan eltávolítani, a só processzálása lassabban is végbemehet. Sajnos azonban kloridok használatának sok hátránya is van. Klorid sók olvadáspontja magasabb, ami sok problémát okoz a só re-processzálásakor, és nagyobb előmelegítést is igényel a reaktor beindítása előtt. Ilyen reaktorokban csak a ritkább, nagyjából 25%-os gyakoriságú, 37-es tömegszámú klór használható, mivel a 35-ös izotóp neutron elnyelése 5-ször nagyobb, ráadásul e folyamat végtermékeként egy hosszú életű radioaktív izotóp, a klór-36 keletkezik, mely lassan kénne bomlik, ami meglehetősen sok bonyodalmat okozna a só kezelése során. Az a tény, hogy ilyen reaktorok nagyobb mennyiségű hasadóanyagot tarthatnak magukban, bizonyos szempontokból előny, biztonsági szempontból viszont hátrányos. Legvégül pedig klorid alapú reaktorok még nem épültek, így ezekkel kapcsolatban nincsenek tapasztalatok.[M. W. ROSENHAL]

Olvadt sós reaktorok leginnovatívabb tulajdonsága az üzem közbeni só kezelés. Ennek a funkciónak köszönhető az alacsony hasadóanyag tartalom, a homogén izotóp összetétel. Mivel a reprocessálás üzem közben zajlik, így egyidejűleg kevesebb veszélyes anyagot kell kezelni, nem úgy, mint szilárd üzemanyagnál, ahol a kazetták, ki és behelyezésénél egyszerre kell nagymennyiségű radioaktív anyagot mozgatni. Ebből az is következik, hogy a reaktort az üzemanyag cserére nem kell leállítani. A tervek szerint ilyen helybeli reprocessáló üzemekben a só kezelése több fázisból fog állni. Első fázisként az erőműből érkező sót gáz fázisú extrakció alá vetik, héliummal buborékolatják át, deszorbeálva ezzel a gáz halmazállapotú hasadási termékeket, a kriptont, és a xenont, valamint pár nemesfémeket. Ez a folyamat, a reaktor mellett közvetlenül fog lejátszódni, míg ezzel párhuzamosan a só egy része a reaktort elhagyva egy hosszabb idejű kezelésre kerül, mely egy az erőművel összekapcsolt vegyi üzemben játszódik le. Ennek a második kezelési fázisnak az alábbi folyamatok vannak:

1.Olvadt só / folyékony fém extrakció

A vegyi üzemben lejátszódó folyamatok elsődleges célja, a különböző nem gáz halmazállapotú hasadási termékek eltávolítása a sóból. Ezek elsősorban a ritkaföldfémek, lantanidák közé tartozó elemek. Ennek első lépéseként a sót egy folyékony fémrel, bizmuttal érintkeztetik. A bizmut elsősorban előnyös tulajdonságai miatt lett kiválasztva erre a feladatra. Olvadáspontja alacsony, 271°C, a folyamat által érintett hőmérsékleti tartományban, (500 – 700°C) elhanyagolhatóan kicsi a gőznyomása, a lantanidák, a lítium, a tórium, és a protaktínium kiválóan oldódik benne, viszont a sóval egyáltalán nem elegyíthető. A redukív extrakció a fémfázis és a só között a következő egyenlettel írható le:



Tehát a folyamat során egy fém halid a bizmut-fázisban lévő lítiummal reagál, melynek eredményeképpen a fém a bizmut fázisba kerül, miközben a lítium a halogén atommal alkot vegyületet. A folyamat szelektivitása meglehetősen gyenge, mivel a lantanidák, és aktinidák szeparációs faktoraik nagyon közel állnak egymáshoz. Emiatt a sóban lévő fémek közül a protaktínium, a tórium, az urán, a transzurán elemek, és a lantanidák mind, egyidejűleg elhagyják a sóolvadékokat.

2. Elektro-kémiai szeparáció

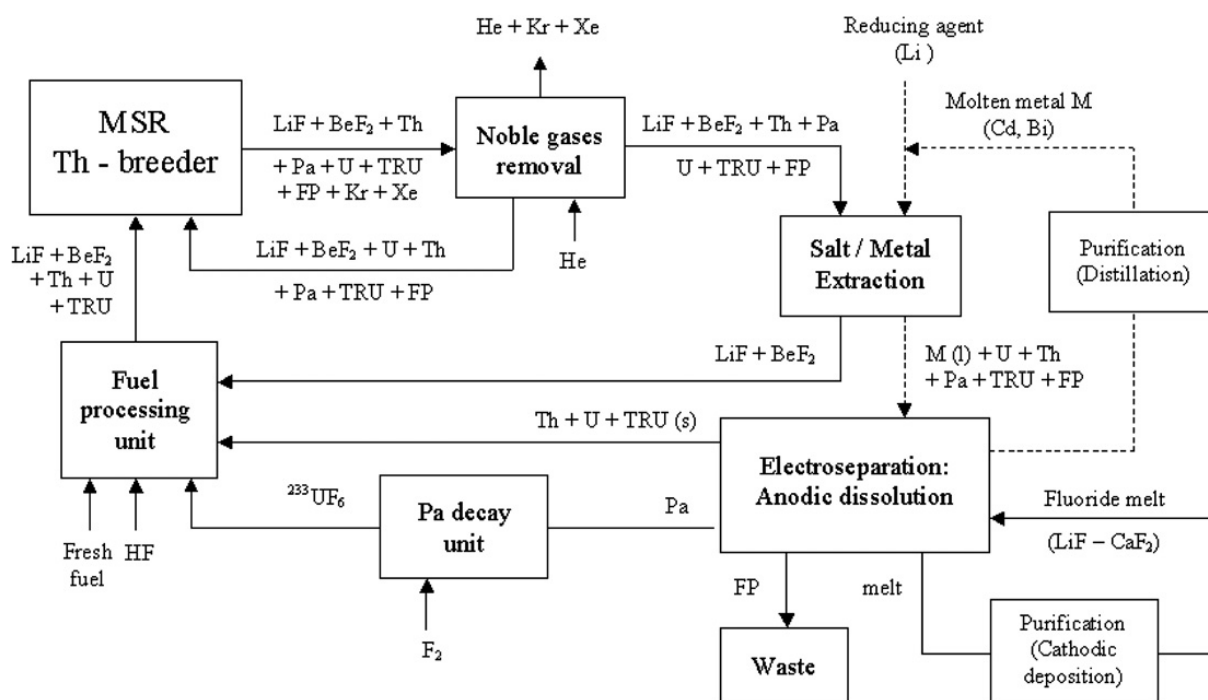
A folyékony fém extrakciót követően a második lépés a kiextrahált fémek egymástól való szétválasztása. Ennek keretében a legfontosabb cél a lantanidák eltüntetése, és a visszamaradó aktinidák reaktorba történő visszajuttatása. A folyamat szelektivitását elsősorban a folyamatban résztvevő elektródok változtatható red-ox potenciálja adja. A szeparáció két lépésben valósulhat meg. Első lépésként az anódon megfelelő feszültség hatására a fémkeverékből a megfelelő fém(ek) leválnak egy LiF-CaF₂ összetételű só keverékbe, majd a következő egység(ek)ben különböző feszültségű katódokon kiválnak a megfelelő fémek.

3. Elillósítási-technika

Ezen szeparációs művelet lényege, hogy a reaktorból érkező elhasznált sót intenzíven átbuborékolatják fluor gázzal. Ennek eredményeként a fluorral könnyen illó vegyületeket képző sókomponensek távoznak gáz formájában a folyadékból. Ezek között a legfontosabb az urán, melynek a sókeverékben jelenlévő formája az urán-tetrafluorid a fluor gázzal urán hexafluoridot alkot (mely illékony), a következő egyenlet szerint:



Ezzel szemben például a plutónium PuF₄ állapotában marad, így ő nem hagyja el a só keveréket. A teljes sókezelési folyamatot a következő ábrán foglalhatjuk össze;



1. ábra: Olvadt-sós reaktorok üzemanyag kezelési rendszere [UHLÍR 2007].

A folyamatábrán látható még az elektro-kémiai szeparáció után egy „Pa decay unit” nevű egység, melynek a következő fontos feladata van. A reaktorban a tórium-232 izotóp neutronbefogással először tórium-233-má alakul, mely viszonylag rövid felezési idővel, (22 perc) protaktínium-233-má alakul β -negatív bomlás hatására. A protaktínium-233 izotóp, a reaktor üzemeltetése során folyamatosan keletkezik, reaktorból való eltávolítása két okból is fontos; egyrészt mert nagyon erős reaktorméreg, továbbá pedig mert értékes hasadó izotóppá bomlik. Ennek a folyamatnak a felezési ideje hosszabb, körülbelül 27 nap, és protaktínium-233 szintén β -negatív bomlással alakul át urán-233-as izotóppá, melynek felezési ideje $1,592 \cdot 10^5$ év. A reaktorban ezen izotópok közül csak az urán-233 az, ami elhasad, ezért szükség van a sókezelési folyamatban egy egységre ahol a protaktínium-ot megfelelő körülmények között lehet tárolni addig, míg az teljes egészében átalakul uránná. Ez a felezési időből kiindulva elég hosszú időt vesz igénybe, mivel körülbelül a felezési idő 10-szeresét kell megvárni ahhoz, hogy jó közelítéssel tiszta urán-233-at kapjunk. Többek között ennek is köszönhető, hogy a sónak e bonyolultabb vegyi üzembeli kezelése sokkal időigényesebb folyamat, mint a reaktor melletti buborékoltatás. [J. UHLÍR]

Attól függően, hogy a só kezelését milyen gyorsan végzik, változik a reaktor tenyészfaktora. Tórium alapú reaktorok tenyészfaktorát a közvetkezéppén írhatjuk fel:

$$BR = (r_c^{232Th} - r_c^{233Pa}) / (r_f^{233U} + r_c^{233U}) \quad (3)$$

ahol r_c a neutron befogási rátája (capture rate), r_f pedig a hasadási rátája (fission rate), az adott izotópnak, BR pedig maga a tenyészfaktor (breeding ratio). Ha reaktorunk tenyészfaktora 1-nél nagyobb, az azt jelenti, hogy a reaktorban nagyobb mennyiségben keletkezik az urán-233-as izotóp, mint amennyit a reaktor elhasít. Ugyanígy ha ez az érték 1-nél kisebb, akkor a reaktorból „fogy” a hasadó izotóp, ezért folyamatosan pótolni kell azt. Éppen ezért, ha azt akarjuk, hogy a reaktor hosszú ideig stabilan működhessen legalább 1-es értékű tenyészfaktort kell biztosítani. Mivel a legtöbb hasadási termék, és a protaktínium is reaktormérgek, tehát neutronokat könnyen befogó izotópok, eltávolításuk sebességének hatása a tenyészfaktoron jelentős.

Sókezelési idő	Tenyészfaktor
Rövid (10 nap)	1,062
Közepesen rövid (3 hónap)	1,024
Közepesen hosszú (6 hónap)	1,000
Hosszú (1év)	0,986
Nagyon hosszú (2év)	0,961
Csak buborékoltatás	0,562

Látható, hogy a só kezelése minél hosszabb ideig tart, annál kisebb lesz a tenyészfaktor. Mivel a lassú kezelés esetén a reaktorban lévő só csak lassan cserélődik, nagymennyiségben feldúsulnak a hasadási termékek, és rengeteg neutronot emésztenek fel, így a tórium \rightarrow urán folyamat lassabb lesz, mint az urán hasadásának folyamata. [ELSA MERLE-LUCOTTE]

Látható tehát, mindent egybevetve, hogy olvadt-sós reaktorok igen sok innovatív tulajdonsággal, lehetőséggel rendelkeznek. Ezek a reaktorok megfelelő formában tényleg képesek lehetnek a negyedik generációs reaktorok céljainak elérésére. Mindazonáltal, az is látható hogy a koncepció, ha nem is gyerekcipőben, de mindenképpen kísérleti stádiumban jár. Éppen ezért a reaktorkoncepcióval kapcsolatban rengeteg kutatási, fejlesztési munkára van még szükség.

3. Nemesgáz eltávolító rendszer

A só kezelésének, másik, szintén fontos része, a gázhalmazállapotú hasadási termékek eltávolítása a sóból. A kiindulási hasadóanyagtól függően nagyszámú hasadási termékről beszélhetünk, melyek alapvetően két nagy csoportba sorolhatók. Az egyik nagy csoport a körülbelül 80-110-es tömegszámig terjed, ide tartoznak a lantanidák, melyek eltávolítását az imént tárgyaltuk, azonban ide tartozik a kripton, mint nemesgáz is. A másik nagy csoport, pedig körülbelül 125-155-ös tömegszám közötti különböző izotópokat tartalmazza. Ide tartozik egy viszonylag hosszabb életű radionuklid, a cézium-137, és egy rendkívül fontos reaktorméreg, a xenon-135 is. A nemesgáz eltávolító rendszer elsődleges célja ez utóbbi izotóp eltávolítása a sóból.

A ^{135}Xe meglehetősen kis stabilitású, felezési ideje, nagyjából 9 óra 6 perc. Reaktorokban a teljes jelenlevő xenon mennyiség csak viszonylag kis része, mindössze pár százaléka, az ami közvetlenül az urán hasadásából származik, nagyobb hányada azonban a tellúr-135 bomlásának eredménye, mely izotóp a hasadásból származik. A ^{135}Te felezési ideje mindössze 30 másodperc, és β -negatív bomlással jód-135 keletkezik belőle, mely 6.6 órás felezési idővel bomlik ^{135}Xe -ná. A teljes bomlási sor a következőképpen néz ki:

Nuklid	^{135}Te	^{135}I	^{135}Xe	^{135}Cs	^{135}Ba
$T_{(1/2)}$	30 másodperc	6.6 óra	9.1 óra	2.6 millió év	stabil

A ^{135}Xe izotóp neutron hatáskeresztmetszete $\sim 2,6 \cdot 10^6$ barn, ami elképesztően magas érték. Összehasonlításképpen egy ^{235}U izotóp hatáskeresztmetszete 550 barn. A neutron elnyelés eredményeképpen ^{136}Xe izotóp keletkezik, ami stabil. A reaktor üzemelése közben, a ^{135}Xe folyamatosan termelődik a hasadásból származó ^{135}Te -ből. Ezzel párhuzamosan a ^{135}Xe mennyiségét csökkentő neutronelnyelés is zajlik. A két folyamat közötti egyensúly nagyjából 40-50 órányi egyenletes reaktorüzemelés után áll be. Ilyenkor a ^{135}Xe koncentrációja a reaktorban állandósul. Amennyiben a reaktor teljesítményét módosítani akarjuk, meg akarjuk növelni azt, akkor a neutronok száma a reaktorban megnő, így a ^{135}Xe izotóp mennyiségét csökkentő neutronbefogás mértéke is megnő. Ha a teljesítményt csökkentjük, akkor viszont a fenti reakció mértéke csökken, a ^{135}Xe tartalom pedig megnő. Amennyiben a reaktort

leállítjuk, a neutron fluxus sok nagyságrenddel lecsökken, így tulajdonképpen a ^{135}Xe -t fogyasztó folyamat jó közelítésben elhanyagolhatóvá válik, az azt termelő folyamattal szemben, így ilyen esetben a ^{135}Xe koncentrációja a reaktorban drasztikusan megnő. Amikor a reaktort újraindítják, a felhalmozódott ^{135}Xe eleinte nagymennyiségű neutronot nyel el, éppen ezért a reaktor „nehezen indul”. Ahogy a ^{135}Xe izotópok a folyamat során fogynak, a neutron fluxus a reaktoron belül ugrásszerűen megnövekedhet, ami óriási biztonsági kockázatokat jelent. Xenon a ma használatos reaktorokban is keletkezik, mely az üzemanyag kazettákból kidiffundálva a hűtőközegbe jut. A xenon reaktorból való eltávolítása mai reaktoroknál nem lehetséges, csupán az elhasznált üzemanyag kazetták eltávolításakor, mely általában elég ritkán, évente egyszer fordul elő. Ezzel szemben számít elég nagy innovációnak olvadt-sós reaktorok azon tulajdonsága, hogy lehetővé teszik a két gázhalmazállapotú hasadási termék, a kripton, és a xenon üzem közbeni eltávolítását a reaktorból. Ennek során a reaktorból távozó só keveréket intenzív héliummal történő átbuborékoltatásnak vetik alá. Annak érdekében, hogy a sóban a xenon-135 koncentrációját alacsonyan tartsák, egységnyi idő alatt a só viszonylag nagy térfogatát szükséges a buborékolató egységen átmozgatni, továbbá mivel a sóban a xenon oldhatósága a hőmérséklet növelésével csökken, érdemes a reaktor közvetlen közelében a deszorpciót végrehajtani. Ezen okokból az MSFR reaktor héliumos átbuborékolató egységét a reaktor, és a hőcserélő közé tervezik. Ezen belül a reaktorból távozó sót egy pumpa hajtja, mely mellett közvetlenül jutatnak nagy mennyiségben hélium buborékokat a sóba. Ezek után a gázbuborékok a folyadékkal együtt mozognak miközben a nemesgázok a sót elhagyva a gázfázisba koncentrálnak. A folyamat egészen addig tart, míg a két fázis el nem válik egymástól. Bár a xenon ilyen jellegű eltávolításának igen nagy potenciálja van, egyértelmű azonban, hogy a buborékok minősége, nagyban befolyásolhatja xenon eltávolításának hatásfokát. Amennyiben a gáz Q_L tömegárammal, főtömegében pedig C_L koncentrációval érkezik, akkor, ha a gáz-folyadék határfelületen a koncentráció C_{LG} a gáz-béli koncentráció C_G a térfogatáram pedig Q_G akkor felírható a következő összefüggés [F.N. PEEBLES]:

$$Q_L * (C_{LG} - C_L) = Q_G * C_G \quad (4)$$

A folyadék fázisban, a só főtömegében, illetve a só-gáz fázishatárnál tapasztalható xenon koncentrációk közötti különbség adja a folyamat hajtóerejét, méghozzá a következő rátával:

$$-Q_L * dC_L = K_L * a * A_c * dL * \left[C_L * \left(1 + \frac{R*T*Q_L}{H*Q_G} \right) - \left(\frac{R*T*Q_L}{H*Q_G} \right) * C_{L1} \right] \quad (5)$$

ahol:

- K_L : folyadékfázis-béli diffúziós állandó (cm^2 / sec)
- a : gáz-folyadék fázishatár területe a deszorbeáló egységnyi térfogatában (cm^{-1})
- A_c : a deszorbeáló egység átmérője (cm)
- dL : a deszorbeáló hossza (cm)
- T : abszolút hőmérséklet (K)
- R : univerzális gázállandó
- H : Henry-konstans

Definiálhatjuk a belépő és kilépő folyadékarom koncentráció hányadosát is a következőképpen:

$$\frac{C_{L1}}{C_{L2}} = \frac{(\alpha + e^{-\beta})}{1 + \alpha} \quad (6)$$

ahol:

$$\alpha = \frac{R*T*Q_L}{H*Q_G} \quad (7)$$

$$\beta = \frac{[K_L * A_c * a * L * (1 + \alpha)]}{Q_L} \quad (8)$$

Mindezek alapján felírhatjuk a deszorbcio hatásfokát:

$$E = \frac{(C_{L1} - C_{L2})}{C_{L1}} \quad (9)$$

amit a (7) és (8) egyenletek segítségével is definiálhatunk a következőképpen[F.N. PEEBLES]:

$$E = \frac{(1 - e^{-\beta})}{(1 + \alpha)} \quad (10)$$

A xenon eltávolításának hatásfoka 3 és 33 % között várható, az MSR üzemelési paramétereit illetően, nagyjából 0,02 inch átmérőjű buborékok alkalmazásával. E értéke elsősorban a xenon folyadékfázisbeli diffúziós állandójától függ. A diffúziós állandó pedig a hőmérséklettől függ,

értéke a hőmérséklet növelésével növekszik. Ezért érdemes a deszorpciót minél nagyobb hőmérsékleten véghezvinni, és emiatt szükséges a deszorbeáló egységet közvetlenül a reaktor mellé, de a hőcserélő elé, elhelyezni.

Az MSRE üzemeltetése során arra törekedtek, hogy a xenon eltávolításának folyamata minél gyorsabban, minél nagyobb hatásfokkal működjön. Ennek érdekében fontos volt meghatározni a folyamat sebességét erősen befolyásoló sebességi együtthatót. A kísérletek során állították fel, a következő empirikus összefüggést, a sebességi együtthatóra:

$$K = \frac{(0,0068 * V * \phi^{0,744} * \sigma^{0,511} * \mu^{0,088} * D^{0,390})}{d^{1,88}} \quad (11)$$

ahol:

- V: A folyadék sebessége a berendezésben (láb/sec)
- ϕ : gázbuborékok térfogata / a berendezés teljes térfogata m^3
- σ : folyadék felületi feszültsége, (dynes/cm)
- μ : Folyadék viszkozitása (cpoise)
- D: Folyadék fázis diffúziós együtthatója (cm^2/s)
- d: a berendezés keresztmetszete (cm^2)

A (11) összefüggés alapján, a kísérletek során a xenon két fázis közötti anyagáramának sebességi együtthatója körülbelül 7,0 és 13,5 láb / órának, a legtöbb esetben pedig 13 láb/órának adódott az irodalom szerint, mely $1,1 * 10^{-3} m/s$ –nak felel meg. [F.N.PEEBLES] [J.R.ENGEL]. Éppen ezért a nemesgáz eltávolító rendszerünk modellezéséhez szükséges sebességi együtthatót mi is ennek az értéknek vettük.

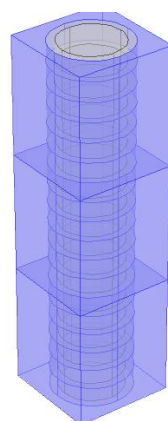
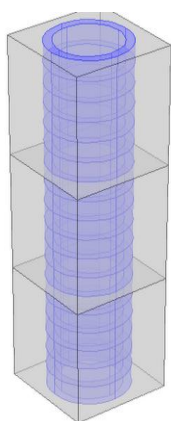
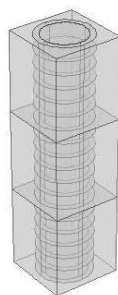
4. Xenon eltávolítás modellezése

A már sokat emlegetett xenon deszorbeáló rendszer megmodellezésének célja, elsősorban a részfolyamatok demonstrálása, továbbá annak bemutatása hogyan változik a xenon sóolvadékbeli koncentrációja a deszorbeáló egységen történő végighaladása során. A feladat megoldásához a *Comsol Multiphysics* nevű tudományos szoftvert alkalmaztam. A program elsősorban fizikai, illetve fizikai-kémiai problémák megoldására alkalmas, leginkább ilyen jellegű folyamatok modellezésére tervezték. A szoftver a következőképpen működik. Először is a szoftveren belül definiálhatjuk az általunk vizsgált rendszer geometriáját, melyet a Comsol segítségével is összerakhatunk, elemi geometriai elemekből (téglalap, gömb, kúp, henger). Komplikáltabb geometriáknál érdekesebb azonban ezt megrajzolni, valamilyen direkt ilyesmire tervezett rajzolóprogrammal, mint például a CAD programok valamelyike. Ennek a geometriának a legkülönbözőbb fizikai, és kémiai tulajdonságokat adhatjuk a program segítségével, ily módon megadhatunk különböző paramétereket, esetünkben például viszkozitást, hőkapacitást, diffúziós együtthatókat... stb. Minden ilyen paramétert nemcsak konstansként definiálhatunk, hanem megadhatunk függvényeket is, tehát definiálhatunk változókat. Ezeket a változókat megadhatjuk más változók, vagy paraméterek függvényében is, így például esetünkben definiálhatjuk a diffúziós együtthatót a hőmérséklet függvényében. A geometriánk különböző felületeire megfelelő határfeltételeket definiálhatunk, így megadhatunk például be és kilépő anyag, térfogat, vagy éppen energiaáramokat, és természetesen ezek paramétereit is megadhatjuk más paraméterek függvényében, így például definiálhatjuk a belépő folyadékáram sebességét, vagy a benne lévő xenon koncentrációját az idő függvényében. A rendszeren belül is létrehozhatunk határfeltételeket, megadhatjuk például fázishatárok közötti anyagáramok irányát, mértékét, esetleg azok függését a koncentrációtól. (boundary conditions) Hasonlóképpen rendszerünk belsejében, belső térfogategységeiben is definiálhatunk transzportfolyamatokat (domain conditions). Miután minden ilyen kezdeti feltételt, paramétert, és változót megadtunk, a szoftver a geometriát az illető fizikai-kémiai kérdéskörtől függően, de általunk is kontrollálható mértékben felosztja véges számú darabra (mesh). Ezen darabokba, illetve ezek metszéspontjaiba adott számú pontokat helyez el, a felosztás mértékétől függően. A számolás lefutásakor a gép, az általunk megválasztott fizikai-kémiai paramétereket leíró differenciálegyenleteket, a létrehozott pontokra megoldja. Ezt nevezzük végelelem módszernek (finite element method). A pontok közötti részein a rendszerünknek a gép megfelelő interpolációkat alkalmaz, így

végeredményként a számunkra érdekes paraméter, vagy változó értékét a rendszer bármely pontján lekérdezhethetjük. Természetesen minél nagyobb számú darabra szedjük szét a kezdeti geometriát, a végeredmény annál pontosabb, valóság hűbb lesz, viszont a számolás lefutásának ideje is annál nagyobb lesz. Ilyen módon, komplikált számolások, nagy felbontásban, órákat, napokat, sőt akár heteket is igénybe vehetnek. Kis felosztást azért sem érdemes választani, mert komplikáltabb számolásokat, például egy turbulens áramlást, egyáltalán a gép sem tud kiszámolni, csak viszonylag nagyobb felbontás mellett. A számolás közben a program segítségével tájékozódhatunk a számolás állapotáról is. Itt a legfontosabb figyelendő érték, a végeredmény hibája. Ez jó esetben a számolás előrehaladtával folyamatosan csökken, a számítás hibája egyre kisebb, az eredmény pedig egyre konvergensebb. Amennyiben a hiba növekszik, akkor a kezdeti feltételekben valamilyen matematikai szempontból értelmetlen feltételt adtunk meg, például két egymásnak ellentmondó függvényt egy határfelületre. Ilyenkor a számolást az amúgy hibás végeredmény megvárása nélkül leállíthatjuk.

Buborékoló rendszerünk modellezéséhez első ízben a program „Bubbly-flow” nevű modulját kívántuk felhasználni. Ebben a modulban a geometria egészében folyadék, és gázfázis is jelen lehet, külön definiálhatunk határfelületeket a gáz, és a folyadékfázisra is, sőt a program lehetővé teszi, hogy az áramlás közben a két fázis között adott anyagáram is fennállhasson. Sajnos azonban ez a modul nem bizonyult a legalkalmasabbnak a probléma első közelítésű modellezésének. Ennek egyszerűen az volt az oka, hogy a számoláshoz szükséges differenciál egyenletrendszer, rendkívül bonyolult és ezért a számítógép a lehető legegyszerűbb geometriai, és határfeltételek mellett is hosszú órákon át számolt, és a végeredmény nagyon gyakran óriási numerikus hibákkal volt terhelt. Ez sok szempontból érthető is, hiszen buborékos folyadékok áramlásának rendkívül bonyolult matematikai leírása van. Ráadásul, mivel a buborékok is haladnak a folyadékon belül, az anyagáram a két fázis között, sok, mozgó határfelületen át zajlik, ami rendkívül összetetten, időigényesen számolható. Mivel ezzel a modullal meglehetősen nehézkessé vált a munka, úgy határoztunk, hogy a rendszerben zajló folyamatok megértése céljából először egy egyszerűbb formában, egy töltetes oszlopként modellezzük meg a deszorbeáló egységet. Ebben az esetben a töltetes oszlop egy hengeres oszlop, melyben egy a sóval reakcióba nem lépő szilárd szemcsés anyag van. Ilyen oszlopok szilárd fázisának felülete óriási, hiszen anyaguk kis szemcsékből áll. A só az oszlop felső végénél lép be az oszlopba, és a szilárd szemcsék felületén a gravitáció hatására folyik az oszlop alsó végének irányába. Ezzel párhuzamosan a xenon-mentes hélium az oszlop alsó végénél lép be, és a nyomáskülönbség hatására áramlik a sóval szemben, az

oszlop felső végének irányába. Ennek a gyökeresen más elképzelésnek előnye, hogy sokkal könnyebben, átláthatóbban kezelhető határfelületeket igényel, melyeket a gép is jóval gyorsabban, és kevesebb hibával számol. Modellünket tovább kellett azonban módosítanunk, egyszerűsíteniünk, mivel a töltetes oszlop töltetének (a szemcsehalmaznak) geometriája túl bonyolult. Így azt leegyszerűsítve, végül egy henger alakú belső oszlop lett a szilárd fázis, melynek felületén folyik a só lefelé. (2., 3., 4. ábra) Ezt az oszlopot, rajta a só réteggel, veszi körül a hélium fázis, mely az ellenkező irányba áramlik. A teljes folyamat legfontosabb része a xenon távozása a sóból. Ezt három részfolyamatra bonthatjuk; egyrészt a xenon a só fázison belül diffúzióval a só felszínére kerül; másrészt a xenon a határfelületen keresztül kijut a héliumfázisba, végül az utolsó részfolyamat a xenon diffúziója a héliumfázison belül. Ezek közül a harmadik folyamatot jó közelítéssel elhanyagolhatjuk, hiszen a xenon héliumfázisban történő diffúziója valószínűleg több nagyságrenddel gyorsabb folyamat, mint a másik kettő.



2. ábra (fent): Az általunk használt töltetes oszlop Comsol modellje
3. ábra (balra): A folyadék fázis helye az oszlopon kézzel kiemelve.
4. ábra (jobbra): A hélium fázis helye kézzel kiemelve.

A második folyamat, a xenon diffúziója a só fázisban. Ennek a fizikai jelenségnek a modellezése során tehát a számítógép írja le a feladat orozslán részét, mi csak a diffúziós koefficiens adhatjuk meg, csak ezzel befolyásolhatjuk a folyamatot. A program a xenon mennyiségét az oszlop mentén következő egyenlettel számolja:

$$\frac{dC_i}{dt} + \text{grad}(-D\text{grad}C_i) + u \text{grad} C_i = R_i \quad (12)$$

Az egyenlet első tagja a xenon koncentráció időbeli változása az utolsó tag a konvektív anyagáramot írja le, a középső tag pedig a diffúziót. A xenon diffúziós együtthatóját (D) meglehetősen hosszas kutatás során sikerült megtalálnunk. Értékét az ORNL egy 1967-es kutatási munkájában találtuk meg, melynek elsődleges célja volt prezentálni az akkori buborékoltatási tesztek eredményeit. Itt D értékét nagyjából $0,14 * 10^{-5}$ és $4.8 * 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{sec}$ közé becsülik, mely körülbelül nagyságrendi becslésnek jó. Nyilván való hogy a diffúziós állandónak hőmérsékletfüggése van, melyet az alábbi egyenlettel írhatunk le: [S. CANTOR et.al]

$$D = A * e^{\left[\frac{-E}{R*T}\right]} \quad (13)$$

Ahol A konstans E pedig az aktivációs energia, melyek függenek az oldott anyag és az oldószer tulajdonságaitól is. Nyilvánvaló hogy modellünk valóság hűbb lenne, ha a diffúziós állandó hőmérsékleti koefficiensét is figyelembe vennénk, mivel azonban láthatóan D értéke is elég bizonytalan, és mivel az oszlopban a hőmérséklet nem változik nagymértékben, ettől eltekintünk első közelítésben.

A modellünkbe beépítendő harmadik folyamat, a xenon áram a folyadék és a gázfázis határán. Ilyen fázisok közötti tömeg fluxus, tömegáram leírásakor figyelembe kell vennünk, hogy annak egységnyi felületre eső mértéke két tényezővel lesz arányos; egyrészt a két fázis határán tapasztalható koncentráció különbséggel, mely tulajdonképpen az hajtóerő, mely a fluxust létrehozza, másrészt pedig egy kísérletileg meghatározható sebességi együtthatóval. Mindezt figyelembe véve, a fluxust a következő egyenlettel írhatjuk le [WILIAM CLARK]:

$$N_0 = K * [C_L - C_G] \quad (14)$$

Ahol C_G a gázfázisban tapasztalható koncentráció, C_L pedig a folyadékfázisban tapasztalható koncentráció a határfelületen, K pedig a sebességi együttható, N pedig maga a fluxus, $\text{mol}/\text{m}^2\text{s}$ egységekben. Ez utóbbi koefficiens modellünkhöz a fejezet elején részletezett összefüggéseket felhasználó irodalomban találtuk meg, melyet ott nagyjából 13 láb/órának

határoztak meg, buborékoltatott rendszerben, 0,02 inch átmérőjű buborékok mellett, mely $1.1 \cdot 10^{-3}$ m/s –nak felel meg. A két koncentráció tag képzését egy kicsit bonyolultabb módon tehetjük meg. Ehhez tulajdonképpen definiálnunk kell a folyadék és a gázfázis határán a két fázisban, a xenon koncentrációjának átlagát, melyet a Comsol segítségével a következőképpen tehetünk meg. Modellünk különböző részein definiálhatunk integrálokat. Ily módon létrehozhatunk térfogati integrálokat, a modell egyes térfogatelemeiben, felületintegrálokat egyes felületekre, vagy vonalintegrálokat például élekre. Az ezen függvények által létrehozott paramétereket, mint változókat a program segítségével definiálhatjuk, majd a program más pontjain fel is használhatjuk őket. Esetünkben a két fázis határát képező felületre definiáltunk egy felületi integrált, az anyagmennyiségre, melynek mértékegysége mol lett. Ezt az értéket maga a számítógép folyamatosan egy a határfelület darabhoz tartozó meglehetősen kis térfogatelemmel osztja el, így tulajdonképpen átlagot képez a koncentrációra a felület egy nagyon kis mélységű darabjára, melynek dimenziója mol/m^3 . Erre azért van okvetlenül szükség, mert a sóban a xenon diffúziója meglehetősen kis értékű, ezért a folyamat hajtóerejét jelentő koncentrációkülönbséget közvetlenül a határfelületen kell meghatároznunk. A kis darabokra való felosztásra pedig azért van szükség, mert a határfelületen a folyás irányában változik a koncentráció. Ennél valamivel egyszerűbb a helyzet mikor a gázfázisú koncentrációt akarjuk meghatározni. Mivel a héliumfázisban a diffúziós állandó jó néhány nagyságrenddel, tulajdonképpen összehasonlíthatatlanul magasabb, mint a só fázisban, a folyadékból távozó xenon azonnal elkeveredik a gázfázisban, ezért elég, ha a gázfázist a folyás irányában néhány darabra felosztjuk, és ezen darabokon definiálunk térfogati integrálokat. Felületünkön a fluxust a program a következő egyenletek alapján számolja:

$$-n * (\rho * \omega_i * u + J_i) \quad (15)$$

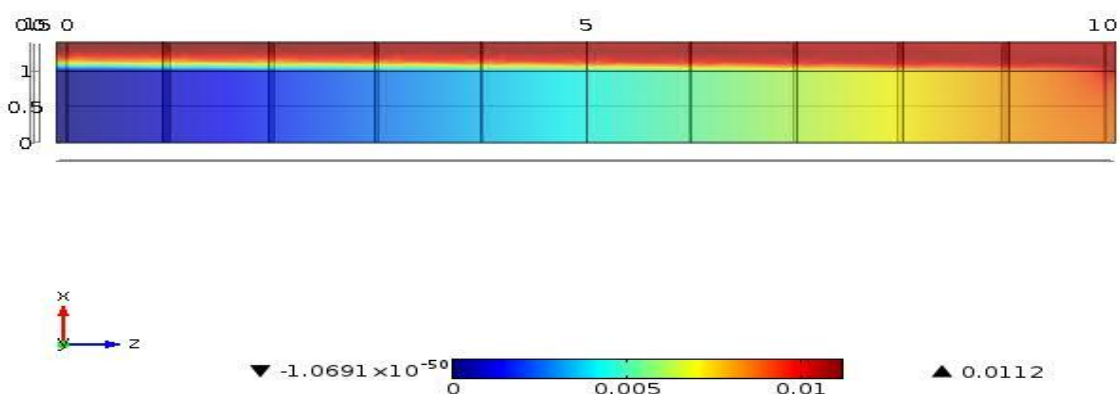
Ahol n az anyagmennyiség, ω_i a xenon tömeghányada, a határfelület kis vastagságú térfogatelemében, ρ a sűrűség, N_0 pedig a fluxus, a határfelületen keresztül.

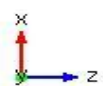
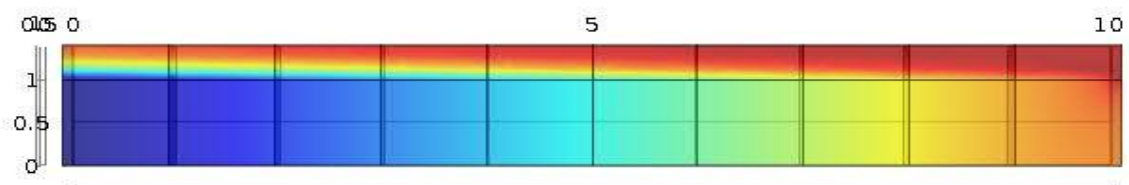
Láthatóan ezzel megvan minden elem a modellben a xenon két fázis közötti anyagáramának kiszámításához. Ha így lefuttatjuk a számolást, akkor azt az eredményt kapjuk, hogy a xenon koncentrációja a két fázis között viszonylag sima lefutású nem számítva egy kis törést a két fázis határán. Tudjuk azonban, hogy modellünkben a két fázisnak mozognia kell, méghozzá ellentétes irányban. Ehhez a program segítségével megadhatunk be- és kiáramlásokat mindkét fázisra. A belépési pontokon megadhatjuk a beáramlás sebességét, és koncentrációját is, mely a hélium fázisra értelemszerűen 0, a só fázisra pedig a xenon

maximális oldhatóságát vettük, mint belépési koncentrációt, mely az irodalom alapján nagyjából 0.01 mol/m^3 értékű. A kilépési felületekre nem kell megadnunk semmit, az ottani sebesség megegyezik, a belépési pontok sebességével, a koncentrációt pedig a gép számolja. Mindezeket figyelembe véve lefuttattuk a számolást.

5. Az eredmények értékelése

A program segítségével a számolást többféleképpen elvégezhetjük, attól függően, hogy milyen eredményre vagyunk kíváncsiak. Ezeket a különféle számolásokat a program, különböző differenciálegyenlet megoldó alkalmazásai végzik el, melyeket szolvereknek nevezhetünk. Például ha a kezdeti állapottól egy adott t idő múlva beálló rendszerállapotra vagyunk kíváncsiak, akkor az idő függő szolvert, (time-dependent solver) kell használnunk, de ha egy $t = \infty$ végtelen időpontban beálló stacionárius állapotra vagyunk kíváncsiak, a stacionárius szolvert kell választanunk. Számolásainkhoz csak ezt a kétféle megoldó programot alkalmaztuk, de a comsol még sokféle szolvert felkínál. A program segítségével, miután a számolást lefuttattuk, a legkülönbözőbb metszeteket készíthetjük a vizsgált geometriáról. Számolásaink során, az egyik szabadon megválasztható paraméter hogy a só milyen sebességgel haladjon. A különböző folyási sebességek mellett láthatjuk a stacionárius állapotokat, a következő ábrákon:



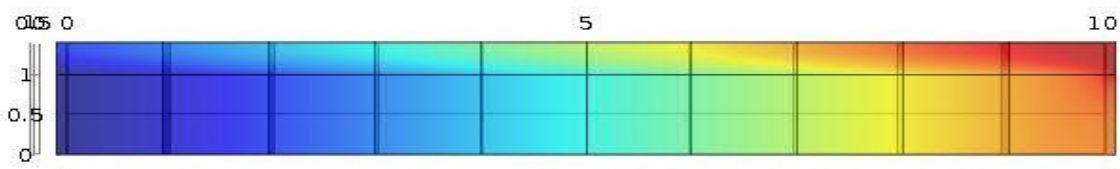


▼ 0

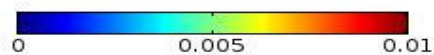


▲ 0.0102





▼ 0



▲ 0.01

A különböző folyási sebességek sorra; 1mm/s 0,1 mm/s 0,07 mm/s 0,06 mm/s és végül 0,01 mm/s. Mindegyik esetben, az ábra felső harmada alkotja a só fázist, alsó harmada pedig a hélium fázist. A geometria, különböző részei eltérő színezettséget mutatnak, a koncentrációtól függően, a szín- koncentráció megfeleltetést az ábrák alatt illetve között elhelyezett skálák biztosítják. A sófázis jobbról balra áramlik, míg alatta a gázfázis épp ellenkezőleg. Megfigyelhetjük a legtöbb eredménynél, hogy a só fázisban keletkeztek

számolási, numerikus hibák. Ezek mindenütt abban nyilvánulnak meg, hogy a só fázisban van olyan pont ahol nem sokkal ugyan, de a kiindulási, beáramlási koncentráció fölötti a xenon koncentráció értéke. A skálákra tekintve láthatjuk, hogy azok felső vége több mint a beáramlási, azaz maximális koncentráció. Ha jobban megfigyeljük az ábrákat, láthatjuk is, hogy egy vékonyabb, sötétebb (tehát nagyobb koncentrációjú) sáv jelenik meg a só fázisban. Ez nyilvánvalóan termodinamikai szempontból lehetetlen, hiszen a folyamat közben a kémiai potenciálok kiegyenlítődésre törekszenek, ezért sűrűsödések nem keletkezhetnek a só fázisban. A hiba oka éppen ezért valahol a programban kereshető. Ehhez nézzük meg újra a (12) egyenletet, mely a következőképpen néz ki:

$$\frac{dC_i}{dt} + \text{grad}(-D \text{grad} C_i) + u \text{grad} C_i = R_i$$

Az ebben az egyenletben található diffúziós tagban a D állandó 10^{-9} nagyságrendű, míg a legtöbb esetben a konvekciós tagban szereplő, u sebesség ennél több nagyságrenddel nagyobb. Feltételezésünk szerint, a hiba abból származik, hogy a diffúziós állandó olyan távol esik nagyságrendileg, a konvektív tag értékétől, hogy a konvekciós tag számolásakor bekövetkező kis hibákat a diffúzió nem egyenlíti ki. Talán éppen ennek köszönhető az is, hogy a hiba folyamatosan csökken, ahogy csökkentjük a só áramlásának sebességét, és körülbelül 0,07 mm/s alatt egyáltalán nem jelenik meg a hiba. Ugyanezt tapasztaltuk, akkor, amikor a diffúziós együtthatót növeltük. Ebben az esetben a diffúziós együttható növelésével csökken a hiba mértéke, majd eltűnik. Nyilvánvaló hogy D értékét nem változtathatjuk szabadon, hiszen az a folyamatra jellemző érték, így csak a folyadék áramlási sebessége maradt, mint befolyásolható paraméter. A 0,07 mm/s áramlási sebességhez tartozó számolást elvégeztük az időfüggő solverrel is, melyről egy animációt is készítettem, melyben a folyamatot 0 –től 1300 szekundum elteltéig vizsgáltam. Az animációban minden egyes képkocka egy adott egész másodperc elteltéhez tartozó állapotot mutatja. Ezt a felvételt, további képekkel, és ábrákkal együtt a dolgozathoz tartozó CD-n mellékeltem.

6. Kitekintés

Munkám során, sikerült elmélyülnöm olvadt-sós reaktorok működésének alapjaiban, igyekeztem e reaktorok legnagyobb előnyét képező sókezelési eljárás rendszerének megértésében. Sikerült a kezelési eljárás fontos részét képező xenon eltávolító rendszert egy áttekintő modell keretében szimulálnom. Nyilvánvaló azonban, hogy ez a modell sok szempontból leegyszerűsített, és távol áll a valóság hű modelljétől. Éppen ezért kíváncsúnak érzem munkám folytatását, és a továbbiakban igyekszem a modellt pontosítani, hiányosságait kijavítani. Ezek között a legfontosabb, hogy a modell még nem teljes, tehát nagyon sok olyan paramétert hanyagoltunk el, melyek befolyásolhatják a folyamatot. Így például áramlástanai folyamatokat teljes egészében kihagytuk, a modellből, továbbá nem vettünk figyelembe hőmérséklet gradienseket sem. Itt fontos megjegyezni, hogy a negyedik fejezet végén taglalt diffúziós állandó hőmérsékletfüggést sem vettük figyelembe. Az egész modell legfontosabb részét, a xenon diffúzióját, is tovább lehet még finomítani, jobb felületi felosztásokkal. A numerikus hibák kiküszöbölésére a szolverek finombeállítása is segíthet a továbbiakban.

7. Köszönetnyilvánítás

Ezúton szeretnék nagy köszönetet mondani elsősorban konzulensemnek, **Márkus Ferencnek**, aki folyamatosan, nagy odaadással segítette munkámat, gyakran saját elfoglaltságait hosszú órákon keresztül félretéve foglalkozott velem.

Köszönetet mondok továbbá a **Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem Természettudományi kara Fizika Tanszékének**, a helyszín, és eszköz biztosításáért

Köszönöm **Tóth Gergely** tanár úrnak, az Eötvös Loránd Tudomány Egyetem Természettudományi Kara Fizikai-kémiai Tanszék docensének, hogy különböző szakmai tanácsokkal látott el munkám során

Köszönöm **Sziráki Laura** tanárnőnek, az Eötvös Loránd Tudomány Egyetem Természettudományi Kara Fizikai-kémiai Tanszék docensének a munkám során néhány alkalommal nyújtott szakmai segítségét.

Köszönetet mondok **Mérő Máté** okleveles építészmérnöknek, a geometria elkészítésében nyújtott segítségért.

Végül köszönöm **szüleimnek**, hogy a dolgozat megírását a körülmények biztosításával elősegítették.

8. Melléklet

A mellékelte CD-n található fájlok jegyzéke:

- [1] : File: 0,001stac.jpeg : stacionárius megoldás, 1mm/s só áramlási sebességnél
- [2] : File: 0,0001stac.jpeg : stacionárius megoldás, 0,1 mm/s só áramlási sebességnél
- [3] : File: 0,00007stac.jpeg : stacionárius megoldás, 0,07 mm/s só áramlási sebességnél
- [4] : File: 0,00006stac.jpeg : stacionárius megoldás, 0,06 mm/s só áramlási sebességnél
- [5] : File: 0,00001stac.jpeg : stacionárius megoldás, 0,01 mm/s só áramlási sebességnél
- [6] : File: 0,00006tds.avi: időléptető szolver megoldás animációja 10 másodperces időléptetésekkel 0 – 1400 szekundumig (0,06mm/s só áramlási sebességnél)
- [7] : File: 0,00006bdf.avi: időléptető szolver megoldás animációja 1 másodperces időléptetéssel 0 – 1400 szekundumig
- [8] : File: 0,00006tdsa.gif: időléptető szolver megoldás animációja az oszlop alsó részére 1 másodperces időléptetéssel 0 - 1400 szekundumig (0,06mm/s só áramlási sebességnél)
- [9] : File: 0,00006tdsk.gif: időléptető szolver megoldás animációja az oszlop középső részére 1 másodperces időléptetéssel 0 - 1400 szekundumig (0,06 mm/s só áramlási sebességnél)
- [10] : File: 0,00006tdsf.gif: időléptető szolver megoldás animációja az oszlop felső részére 1 másodperces időléptetéssel 0-1400 szekundumig (0,06 mm/s só áramlási sebességnél)
- [11] : File: 0,00006/0tds.jpeg: időléptető szolver megoldás 0. másodpercben (0,06 mm/s só áramlási sebességnél)
- [12] : File: 0,00006/100tds.jpeg: időléptető szolver megoldás 100. másodpercben (0,06 mm/s só áramlási sebességnél)
- [13] : File: 0,00006/200tds.jpeg: időléptető szolver megoldás 200. másodpercben (0,06 mm/s só áramlási sebességnél)
- [14] : File: 0,00006/500tds.jpeg: időléptető szolver megoldás 500. másodpercben (0,06 mm/s só áramlási sebességnél)
- [15] : File: 0,00006/1000tds.jpeg: időléptető szolver megoldás 1000. másodpercben (0,06 mm/s só áramlási sebességnél)
- [16] : File: 0,00006/1400tds.jpeg: időléptető szolver megoldás 1400. másodpercben (0,06 mm/s só áramlási sebességnél)
- [17] : Fileok: 0.jpeg, 100.jpeg, 200.jpeg, 500.jpeg, 1000.jpeg, 1400.jpeg a 10-16 file-okkal azonos állapotokban csak oldalirányból mutatják a rendszer választott részét. (1mm/s sebesség mellett)

[18] : File: oszlop.jpeg: a modellezett oszlop képe a Comsol-ban

[19] : File: folyadek.jpeg: a folyadék fázis elhelyezkedése a modellezett oszlopon

[20] : File: helium.jpeg: a hélium fázis elhelyezkedése a modellezett oszlopon

[21] : File: BALLA_ARON_TDK_2012.pdf : a dolgozat elektronikus példánya

8. Felhasznált irodalom- Hivatkozások

G. VAN GOETHEM – P. MANOLATOS – M.HUGON – V. BATHNAGAR – M. DEFFRENNES – S. WEBSTER (2009): 7th European Commission Conference on Euratom research and training in reactor systems – *Publications Office of the European Union*, Luxembourg. pp.

COHEN, B. L. – (jan. 1981) –“Breeder Reactors: A Renewable Energy Source,” *American Journal of Physics*, pp. 51

M.W. ROSENTHAL – P.R. KASTEN – R.B. BRIGGS (1969): *Molten Salt Reactors — History, Status, And Potential*, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee

MURRY ROSENTHAL (2009), *An Account of Oak Ridge National Laboratory's Thirteen Nuclear Reactors*, ORNL/TM-2009/181

T. AUGER – G. BARREAU – J. P. CHEVALIER – X. DOLIGEZ – S. DELPECH – H. FLOCARD – B. HAAS – D. HEURER – E. MERLE-LUCOTTE (2008). *The CNRS Research Program on the Thorium cycle and the Molten Salt Reactors*

F.N. PEEBLES (1968). *REMOVAL OF XENON-135 FROM CIRCULATING FUEL SALT OF THE MSBR BY MASS TRANSFER TO HELIUM BUBBLES*, Oak Ridge, National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee

J.R. ENGEL – R.C. STEFFY (1971) *Xenon Behaviour in the Molten Salt Reactor Experiment*, Oak Ridge, National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee

S. CANTOR - J. W. COOKE - A. S. DWORKIN - G. D. ROBBINS - R. E. THOMA - G. M. WATSON (1968) *Physical properties of molten salt reactor fuel, and flush salts*. Oak Ridge, National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee.

R. C. BRIANT - ALVIN M. WEINBERG (1957) *Molten Fluorides as Reactor Fuels* . Oak Ridge, National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee.

ELSA MERLE-LUCOTTE – et al. *Influence of the Reprocessing on Molten Salt Reactor Behaviour*

JAN UHLÍŘ (2007) *Chemistry and technology of Molten Salt Reactors – history and perspectives*

D. T. INGERSOLL (2005) *Status of Physics and analysis for the liquid-salt-cooled very high temperature reactor*

WILLIAM M. CLARK (2009) Educational Uses of COMSOL Multiphysics:
Carbon Dioxide Absorption with Chemical Reaction